

· 综述 ·

快堆燃料循环与金属燃料

郭奇勋*, 李 宁

(厦门大学 能源学院, 核能研究所, 福建 厦门 361102)

摘要: 快堆作为第四代先进核能系统中最重要反应堆型,有望显著提高铀资源利用率和减少核废物量,快堆及其密切相关的核燃料循环和金属燃料技术越来越受到人们的广泛关注.本文综述了快堆(特别是行波堆)、核燃料循环及金属燃料技术的研究进展,重点介绍了美国的行波堆和金属燃料技术,并阐述了行波堆初期采用“一次通过式”简化燃料循环对于快堆早日实现大规模商业化的重要意义.

关键词: 核能;核燃料循环;快堆;行波堆;金属燃料

中图分类号: TL 211; TL 31

文献标志码: A

文章编号: 0438-0479(2015)05-0593-10

在当前的商业轻水堆中,天然铀资源的利用率不到1%,储存在大量贫铀和乏燃料中的巨大能量可以成为一种宝贵的资源,但遗憾的是这种资源仍未开发利用甚至经常被当作废物对待.从核能开发早期形成的核燃料循环仍是一个非常复杂、昂贵、耗时的过程,其发展战略和路径已经过时.虽然出现了一些具体改进方案,但还是难以大规模实现推广.

行波堆通过优化堆芯中子经济性并提高燃料燃烧,具备变成开式燃料循环快堆的潜力,可以大幅简化传统燃料循环.该技术使核能发电在后处理经济可行前即可提高资源利用率,这是一个极好的从创新概念变成颠覆性技术的范例.金属燃料是发展行波堆和先进快堆的核心技术,快堆燃料将从现有的氧化物,逐步改为混合氧化物,最终过渡到增殖和安全性能最高的金属燃料.目前的金属燃料离行波堆实现足够潜能的要求还有一定差距.

在本文中,我们综述了国内外专家对快堆(特别是行波堆)核燃料循环与金属燃料的相关研究和评论,重点介绍了核能与核燃料循环中的一些创新概念,并加入了作者的解读和展望,旨在与读者分享和切磋.

1 快堆与行波堆

1.1 快堆

快中子反应堆(简称快堆)是以(高能)快中子引起核裂变链式反应的反应堆.快堆是第四代先进核能系统中最重要反应堆型.快堆运行时,一方面消耗易裂变燃料如铀-235(U-235),另一方面又产生新的易裂变燃料如钚-239(Pu-239).当产生的易裂变燃料多于消耗的易裂变燃料时,易裂变燃料就得到了增殖,这类快堆称为快中子增殖反应堆,其转换比大于1^[1-2].

快堆与轻水堆(热堆)的一个主要区别是:轻水堆消耗的核燃料主要是U-235,而快堆消耗的核燃料主要是从U-238转变而来的Pu-239.天然铀中,易裂变的U-235只占约0.7%,丰度非常低,而不易裂变的U-238占到99.2%以上.目前,轻水堆对铀资源的利用率只有约1%或更低,而快堆可以将利用率提高30~60倍^[1-3].

发展快堆主要有两方面的重要意义:一是提高铀资源的利用率,保证铀资源的长期稳定供应,二是可以焚烧和嬗变轻水堆乏燃料中的长寿命高放射性废

收稿日期:2015-03-24 录用日期:2015-06-10

基金项目:中央高校基本科研业务费专项(2012121034)

* 通信作者:qxguo@xmu.edu.cn

引文格式:郭奇勋,李宁.快堆燃料循环与金属燃料[J].厦门大学学报:自然科学版,2015,54(5):593-602.

Citation:Guo Qixun, Li Ning. Fast reactor fuel cycles and metal fuels[J]. Journal of Xiamen University: Natural Science, 2015, 54(5): 593-602. (in Chinese)



物,减少核废物量^[1]. 全世界快堆已有 350 多堆年运行史,快堆燃耗达到 130 GW·d/t,热电转化效率达 43%~45%. 世界上许多国家已有快堆发展战略,快堆相关研发已经很深入^[4].

1.2 行波堆

行波堆(如图 1)不同于传统快堆. 行波堆通过对异质堆芯燃料的巧妙分布和运行控制,核燃料从一端低浓缩铀启动源点燃,多余的裂变中子将旁边不易裂变的 U-238 转换成易裂变的 Pu-239,当达到一定浓度时形成自持裂变反应,同时开始焚烧已在原位生成的燃料,形成行波. 行波以增殖波前行、焚烧波后续的方式在燃料中以每年几厘米的速度自持传播,一次装料可以连续运行数十年. 形象地说,行波堆像蜡烛,用火柴点燃后渐渐烧尽,并可以自身点燃其他蜡烛. 行波堆技术可将铀资源利用率提高一个数量级,废物量减少一个数量级,并使核燃料循环大大简化. 行波堆是可以首先在开路燃料循环中用低浓铀启动的快堆^[4].

行波堆应用无需大规模燃料后处理和长期储备钚,只需初期使用低浓缩铀点燃即可无限期使用天然铀、贫铀或轻水堆乏燃料,变废为宝,实现“核燃料一次性实时原位增殖焚烧”,简化复杂昂贵的核燃料循环,并且降低核扩散风险. 行波堆可以大规模在全球推广应用,充分实现核能成为化石燃料后时代清洁无

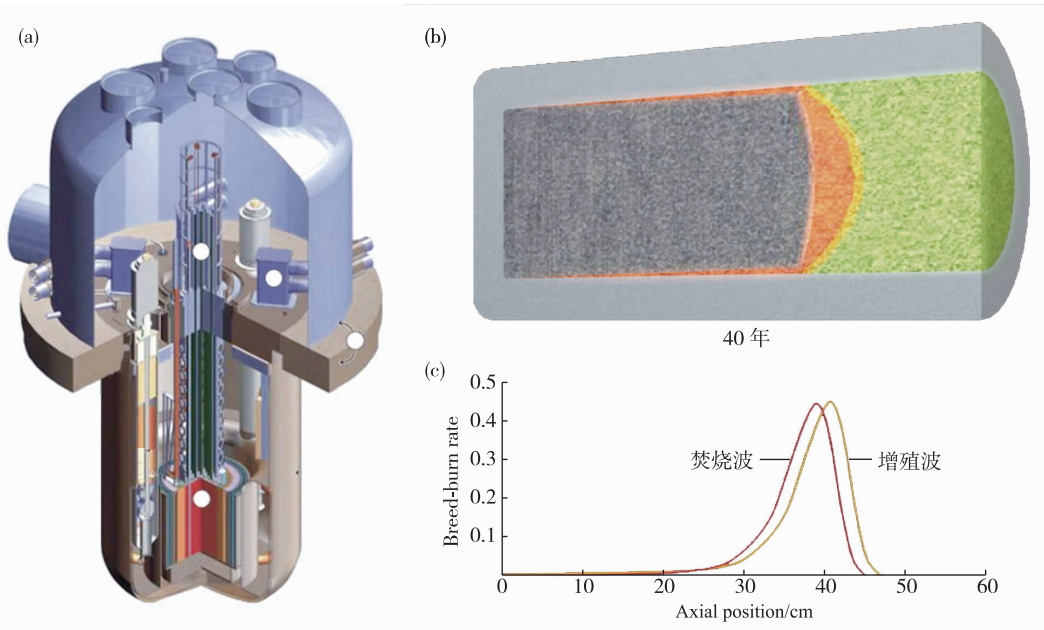
碳排主流一次能源的巨大潜力. 行波堆的开发成功将对世界范围内的核能发展,甚至全球能源政策和气候变化应对策略,产生划时代的推动和促进作用,意义深远.

2 核燃料循环

2.1 核燃料循环概念

核燃料循环是人类应用核裂变能的基础. 核燃料循环指从铀矿开采(对于铀/钚燃料循环)到核废物最终处置的一系列工业生产过程. 回收的核燃料可以在热堆中循环,也可以在快堆中循环,统称“闭式”核燃料循环. 如果乏燃料不进行后处理而直接处置,则称为“一次通过式”核燃料循环. 基于“一次通过式”和“闭式”核燃料循环的概念,目前主要有 3 种核燃料循环方案:1) 轻水堆“一次通过式”核燃料循环;2) 轻水堆“部分闭式”核燃料循环;3) 快堆轻水堆联合“闭式”核燃料循环^[5].

在目前广泛应用的热堆核电厂的核燃料循环模式下,采用“一次通过式”核燃料循环,天然铀资源的利用率约为 0.6%;如果采用一次“闭式”核燃料循环,天然铀资源的利用率可以达到约 1%. 在快中子增殖堆核电厂的“闭式”核燃料循环模式下,一般认为可使铀资源的利用率提高 50~60 倍,国际原子能机构



(a) 行波堆模型图;(b)行波堆运行 40 年后堆芯增殖焚烧区;(c)行波堆运行 40 年后堆芯不同轴向位置的增殖焚烧速度.

图 1 行波堆
Fig. 1 Traveling wave reactor

(IAEA)给出的数据为 30 倍左右.从可持续发展的角度出发,为了充分利用铀资源和减少核废物体积及其放射性,从“闭式”核燃料循环起步可能是必由之路^[5],除非开发出具有创新性的先进核能系统,比如行波堆.

2.2 核燃料循环方案^[6-7]

2.2.1 轻水堆“一次通过式”燃料循环

轻水堆“一次通过式”核燃料循环,是目前最简单、最经济的核燃料循环.该循环分为 6 个主要步骤:铀矿开采、铀转化与浓缩、燃料制造、轻水堆、乏燃料储存、废物处置(图 2 第 1 行).

2.2.2 轻水堆部分“闭式”燃料循环

轻水堆乏燃料经过后处理,提取出铀和钚,并将回收的铀和钚制造成新燃料,最后将合成的燃料送进轻水堆中焚烧.在进行处理之前,需要将高放废物(HLW)储存几十年以降低其放射性和放射性衰变热.轻水堆乏燃料的回收利用会改变钚的同位素,这样的乏燃料只能回收一两次.许多国家都在回收轻水堆乏燃料.上述过程称为轻水堆部分“闭式”核燃料循环(图 2 第 1、2 行).

2.2.3 快堆轻水堆联合“闭式”燃料循环

快堆能够通过中子吸收将可裂变材料 U-238 转化为易裂变材料 Pu-239.这样,轻水堆铀浓缩设施中产生的贫铀、轻水堆乏燃料的铀和钚都有可能得到

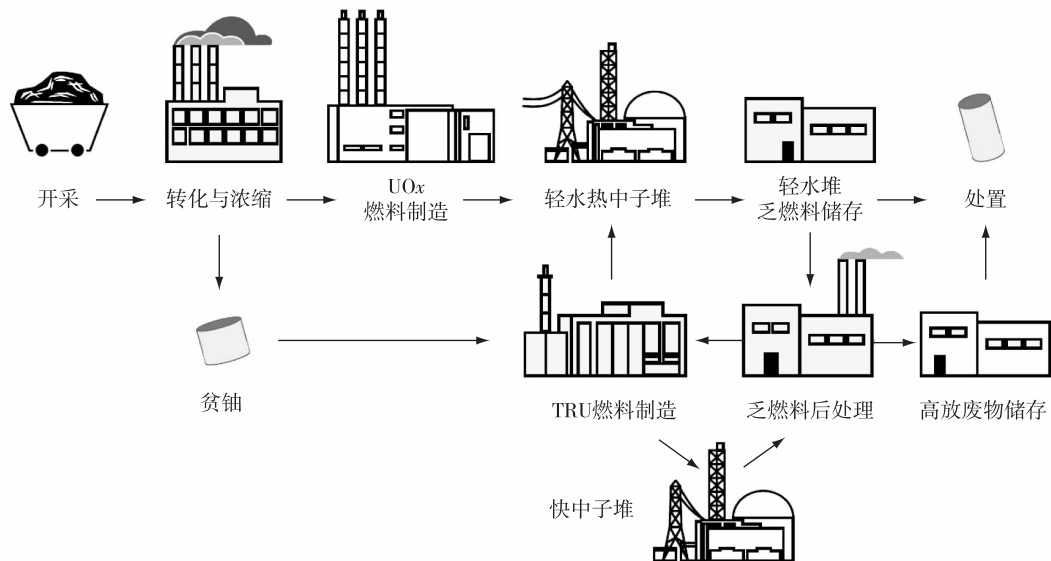
充分利用.多次循环的快堆对铀资源的利用率可以达到轻水堆的 60 倍.然而,快堆的启动需要大量的易裂变燃料.传统的方法是对轻水堆乏燃料进行后处理,再利用回收的钚来制造快堆燃料.轻水堆运行 30 年后,其乏燃料中回收的钚足够启动一个高转换比的快堆.快堆在启动和运行后,其乏燃料经过后处理继续回收铀和钚;并用回收的铀和钚以及选配的贫铀来制造新的快堆燃料组件,直至形成无法再循环利用的废物.

对快堆轻水堆联合“闭式”燃料循环(图 2 第 1~3 行)的分析可包括 3 类不同作用的快堆:1) 用作消耗锕系元素,如转换比为 0.75;2) 用作自持式核燃料循环,如转换比为 1.0;3) 作为快堆增殖裂变燃料,如转换比为 1.23,并且用过量的超铀元素来启动更多的快堆.

2.2.4 行波堆“一次通过式”燃料循环(可持续快堆)

从传统上来说,可持续核能的要求是具备一个燃料后处理和再循环的“闭式”燃料循环.然而,几十年来有很多人提议,采用“一次通过式”燃料循环发展可持续快堆,如行波堆,该设计是先用低浓缩铀、钚或其他辅助中子源启动反应堆堆芯,再更换为天然铀或贫铀继续焚烧,铀的利用率可以比现有的轻水堆高数倍到一个数量级.

这种堆型有几个潜在优点:1) 核燃料循环简单且成本低;2) 行波堆启动后可以直接使用贫铀或天然铀



轻水堆“一次通过式”燃料循环(第 1 行);轻水堆部分“闭式”燃料循环(第 1、2 行);
快堆轻水堆联合“闭式”燃料循环(第 1~3 行).

图 2 核燃料循环方案
Fig. 2 Nuclear fuel cycle alternatives

为燃料,甚至可以用部分燃料再启动其他行波堆;3)行波堆体系不需要长期拥有浓缩铀(启动反应堆堆芯除外)及浓缩设施。

2.3 核燃料循环与快堆^[4]

2.3.1 传统快堆与“闭式”燃料循环的相互依赖

传统快堆需要高浓铀或钚启动,并借助后处理设施循环利用,这需要原料储备和后处理设施.商业化后处理设施的目的是为了提高规模经济效益,降低单位成本,但往往需要上千亿人民币的资金投入和十几年的时间建设.在快堆商业化前,商业化后处理设施投资回报率极低,长期建运所需的大量资金难以获得.法国、英国、日本、俄罗斯、印度、美国都建有后处理设施.除法国外,其他国家的后处理厂都没有实现真正意义上的商业化运行,而且基本是小型后处理厂,一些已经被关停,一些甚至根本没有运行过;中国近期已自主建设成功小型中试后处理厂,正在和法国谈判引进后处理大厂.与之对应的是,超过350堆年的快堆技术尚未实现商业化.传统快堆与“闭式”燃料循环相互依赖,限制了未来可持续核能系统的发展.在核燃料循环后端,高放废物处置方案和技术一直悬而未决,严重制约了核电的安全高效发展,从而对快堆的需求预期减低,这是一个更大的两难问题。

2.3.2 行波堆去传统快堆与“闭式”燃料循环的耦合

当今世界的可持续发展需要大规模的清洁能源,核能是目前的最佳候选能源之一,但它面临着因上述两难问题造成的僵局.打破僵局的关键是暂时弱化甚至切断快堆与“闭式”燃料循环的耦合,先开发基于“一次通过式”燃料循环的可持续快堆(如行波堆),发展部署快堆发电创造价值,解决清洁低碳能源供应问题,同时为后续完善燃料循环赢得时间和积累技术及资金,这种发展模式具有重大的现实和战略意义。

3 行波堆开发

3.1 行波堆开发示范挑战和展望

美国泰拉能源公司(TerraPower)(简称泰拉能源)由微软创始人比尔·盖茨先生创投,集全美核能精英开发行波堆技术,计划在中国建设示范堆.泰拉能源的行波堆设计采取池式钠冷快堆的技术路线和许多实施方案.这和已经临界并网运行的中国实验快堆采用的技术路线相近,也是计划中即将建设的商业化示范快堆的技术路线.行波堆技术发展实现的主要挑战在燃料、材料、长寿命堆芯的工程化设计及克服

燃料变化对反应堆稳定性的影响等方面。

为最大程度利用快堆的增殖功能实现行波式裂变,泰拉能源的行波堆设计采用金属燃料,不同于现有轻水堆和常规快堆使用的氧化物陶瓷燃料.金属燃料是目前世界上多数快堆路线中计划发展达到的高性能燃料,据此设计的快堆具有较好的安全性.为能够在行波堆内对贫铀和天然铀等完成足够的增殖,其燃料燃烧需要达到的燃耗深度高于常规快堆设计标准。

与高燃耗燃料需求的挑战相对应,燃料包壳和堆芯构件需要在高通量的中子辐照下长期保持热物理力学性能和结构尺寸的稳定性.如果采用不换料设计,包壳的辐照剂量需要达到常规快堆设计指标的数倍.开发测试高抗辐照材料是非常关键的技术开发任务。

随着行波堆增殖焚烧性能的提高和长寿命的运行,燃料组分和性能的不断变化为反应性的稳定和控制带来一定的挑战.行波堆设计的初装燃料为低浓铀和贫铀,在增殖焚烧过程中产生钚和其他可裂变元素及裂变产物,并且不断改变在堆芯中的分布,会导致反应性的变化.这个问题有待充分的设计改进和优化来解决,并需要通过严格的安全分析和认证。

在行波堆的设计过程中,泰拉能源发现为了降低燃料包壳的辐照剂量,在无需换料条件下尽快实现增殖-焚烧的行波,必须设法控制燃耗的峰值和平均值.因此在示范堆和第一代商业堆的设计中,采用了较低的燃耗.这个设计燃耗深度远低于由行波堆中子物理特性决定的限度,但已经远超轻水堆和常规快堆、增殖堆的燃耗设计限度,达到较高的资源利用率.由于行波堆良好的中子经济性,第一代行波堆的乏燃料只需置换包壳后即可直接再度使用,加深燃耗,进一步提高资源利用率.置换包壳,包括可能需要的燃料铸锭.这是个技术挑战,但基本上是物理机械过程,无需化学分离萃取,相对简单易行,且有较高的防核扩散性.通过这种途径,行波堆增殖产生的燃料还可以被取出用来启动新一代行波堆,无需再用浓缩铀启动源.到燃料被消耗到超过可以简单处理的限度时,如果认为燃料利用率还需提高,或需要把乏燃料的放射性寿命大幅度降低,那么可以用后处理方法来提取裂变材料供继续使用(如回到行波堆),或进入焚烧堆或加速器驱动系统(ADS)进行嬗变处理.这个期限已被推后很多年,并且需要处理的量也少于现有方法和体系。

泰拉能源已制定了行波堆示范电站建设的时间

表,并计划首先在中国示范.行波堆技术的合作开发示范将带来大量宝贵的技术和经验,可以有效支持中国既有的快堆与燃料循环体系开发和示范,并从中得到相应的反馈和支持.这种多赢的协同发展将揭开核能技术发展史上的一个创新篇章,具有重大价值和深远意义,值得我们共同期待、关注、支持和投入.

3.2 行波堆国际合作开发战略建议

我国“热堆-快堆-聚变堆”三步走的核能发展战略已迈出第二步.我国第一座钠冷快中子反应堆——中国实验快堆(CEFR),于2014年12月18日在中国原子能科学研究院首次实现满功率稳定运行72 h,其主要工艺参数和安全性能指标达到设计要求,标志这一重大科学实验设施设计性能得到验证.福建宁德和三明商业示范快堆已在筹备中.与美国、法国、日本、俄罗斯、印度相比,我国的快堆技术、开发能力和设施落后不少年.我国与美国合作开发突破性的行波堆技术,对我国核能发展意义重大.

泰拉能源作为商业化运作的创新技术开发公司,已与中国核工业集团公司、中国广核集团有限公司、国家电力投资集团公司等开展合作交流,并得到中美两国政府的高度重视和支持.基于商业利益的考虑,泰拉能源对于行波堆的核心技术和知识产权会重点保护和开发,但是其金属燃料的技术基础和数据是美国及其他国家几十年快堆发展的成果,需要得到我国技术和安全监管机构的认可和验证.对于提高燃耗和辐照剂量的研发,也需要学术、技术和法律等的支持,尤其是在机理和安全认证方面.

我方由高校、研究设计单位及核安全监管机构的技术服务部门组成,和泰拉能源形成国际化的产学研合作体.我国快堆与核燃料循环系统的发展规划中包括在中长期开发金属燃料技术,提升核能的安全性、经济性和可持续性.因此合作各方的需求和发展基础与定位高度互补,可以形成多赢的合作体.

行波堆国际合作开发战略建议如下:1) 签署中美政府间技术进出口许可与合作开发协议(已签署);2) 组织相关企业与科研机构开展技术与经济性评估(开展中);3) 设立行波堆开发示范专项,支持示范堆设计建运;4) 启动安全审查、许可和监管行波堆技术与示范堆;5) 考虑组建中方合股公司,再与泰拉能源组建合资公司.泰拉能源注入行波堆技术,继续开展堆芯、核岛与燃料研发和设计,管理国际验证测试合同;我方合股公司承接开发示范专项,出资开展初步设计和最终设计,获得许可,建设运行示范堆(或原型堆),推动行波堆商业化.

4 行波堆金属燃料研发

4.1 金属燃料的战略重要性

金属燃料是发展安全高效的行波堆和先进快堆的核心技术.国家和企业对核燃料的供给安全、资源利用及核燃料循环高度重视,在国家中长期科技发展规划、核电中长期发展规划及“十二五”科技发展规划中均将快堆开发作为核电发展的战略重点.快堆燃料将从现有的氧化物,逐步改为混合氧化物,最终过渡到增殖和安全性能最高的金属燃料.

泰拉能源在行波堆技术开发过程中,对金属、氧化物、氮化物、碳化物等多种燃料,以及液态金属钠、重金属铅或铅铋合金、水、气体等核冷却液体系进行系统分析比较.由于行波堆以实时原位增殖、焚烧原理工作,要求优良的中子经济性和可以支持增殖与焚烧的快中子能谱.为了充分利用现有最为成熟的快堆技术,早日完成行波堆的开发示范,泰拉能源选择了金属燃料、池式钠冷的体系和设计.

4.2 金属燃料国内外研究概况

金属燃料是高增殖比快堆设计的燃料首选.早期金属燃料的辐照肿胀十分严重,使用改进后的设计参数和包壳材料后,燃料燃耗大幅提高. U-Pu-Zr 合金的固相线温度和与包壳材料之间的共晶温度得到大幅提高,为金属燃料的高燃耗应用奠定了基础^[8-9].

美国从20世纪60年代以二号实验增殖堆(experimental breeder reactor II, EBR-II)和1980—1990年间以快中子束流测试设施(fast flux test facility, FFTF),开发测试了 U-5Fs(5代表5%,表示质量分数,下同;Fs表示裂变产生的混合物)、U-10Zr及 U-Pu-Zr合金燃料,实验测试的燃料元件数达十几万个.日本已经实现 U-Zr合金燃料的工业规模生产及 U-Pu-Zr的小规模试制;印度已经研制出 U-2Zr合金燃料棒,用于制造 U-Pu-Zr金属燃料的装置正在安装调试之中^[9].

中国在金属燃料领域处于起步阶段.中国原子能科学研究院与中国核动力研究设计院曾在20世纪90年代研制了 U-10Zr合金样品,并研究了热处理工艺和相变.针对铀资源贫乏的制约,中国的核能战略以快堆为替代现有轻水堆的主流技术,并且在制定发展金属燃料的规划(如图3)^[9].

4.3 泰拉能源的金属燃料研发测试^[10]

行波堆将建立在已有快堆经验之上.全世界快堆

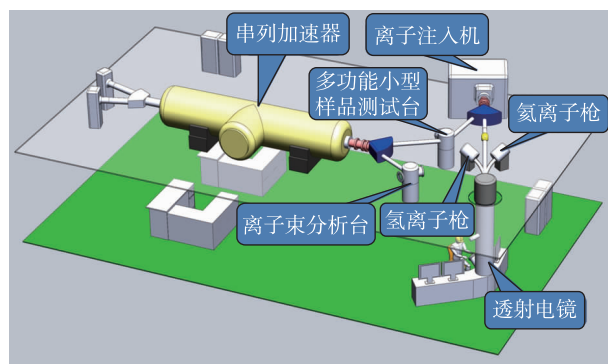


图4 加速器与透射电镜联机设施

Fig. 4 Accelerator coupled with TEM facility

的百分数是原子分数,下同)。在美国的 EBR-II 中,用 HT-9 铁素体/马氏体合金钢作包壳的燃耗在实验测试中达到 20%,但因项目终止没有进一步实验测试;2) 为达到 30% 的燃耗,包壳遇到的辐照剂量高达 500~600 dpa。在美国的 FFTF 中,HT-9 钢的辐照剂量最高超过 200 dpa。

燃耗和包壳抗辐照剂量设计上限的提高可以提升快堆性能和经济性;当上限突破一定数值时,量变形成质变,基于快堆技术的行波堆得以实现。

基于我国的金属燃料技术现状,以及安全认证的需求,通过国际合作将提高我国的技术和安全分析、认证水平,开始认知、掌握核心技术,逐步建立安全认证的基础、标准与程序。主要突破为引进、消化、吸收核能先进国家已有的技术,并在此基础上从现有实验数据极限向设计需求发展提出材料设计与制备、安全认证的解决方案。利用先进信息搜索技术和数据挖掘方法,形成技术开发和安全认证所需的数据库;采用材料科学相关领域(如纳米结构、制备技术等)的最新发展成果和手段,探索解决材料辐照肿胀(限制燃料元件寿命)、低熔点合金相形成(造成燃料包壳破损)、成分结构重组(改变燃料肿胀和裂变气体排放)等问题,提出规模化连续制造工艺方案;参考学习他国核燃料安全认证的标准和程序,建立形成我国独立认证能力与体系的规划。

从长远技术发展路线来看,如果以国际合作项目启动的开发工作引进、消化、吸收了国际先进金属燃料技术,那么我国的快堆技术发展进程可以加速至少十几年,避免重复很多弯路和不必要的投资建设;如果提升了快堆设计使用的燃耗和辐照剂量上限,则可提高快堆性能和经济性,促进快堆商业化的提前实现;如果解决了达到高燃耗和高辐照剂量所需的技术难题,能够顺利实现行波堆,那将会对我国乃至世界

的清洁、安全、低碳能源发展起到巨大的推动作用。

5 美国快堆金属燃料相关技术^[11]

金属燃料的主要优点是热导率高、裂变原子密度大、加工容易等,在核反应堆发展初期被大量选用,比如 U-5Fs、U-Zr、U-Pu-Zr、U-TRU(超铀元素)-Zr 等,后因辐照生长、辐照肿胀等缺点逐渐被氧化物燃料取代。美国在数十年金属燃料技术研发过程中,克服了很多早期金属燃料的缺陷。21 世纪初美国提出的四代钠冷快堆、行波堆和加速器驱动系统,日本提出的 4S 钠冷小堆,及欧洲的一些国家、韩国等在概念设计中均使用 U-Zr 和 U-Pu-Zr 或 U-TRU-Zr 金属燃料。

美国从 20 世纪 60 年代以 EBR-II 实验快堆和 1980—1990 年间以 FFTF 快中子通量实验装置,开发测试了 U-5Fs、U-10Zr 及 U-Pu-Zr 合金燃料^[12-13]。金属燃料的合金化元素通常采用 Zr,作为最受青睐的合金元素,Zr 能提高合金的固相线温度,增强合金在辐照条件下的尺寸稳定性,减少燃料包壳化学相互作用(FCCD)^[14-15]。以 D9 奥氏体不锈钢为包壳的 U-19Pu-10Zr 合金达到 18.4% 燃耗,用 HT9 马氏体合金作包壳的燃耗达到 20%,实验测试的燃料元件数达十几万个,其技术和经验代表了世界领先水平。

金属燃料具有易制造、导热性高、裂变和增殖能力高以及多普勒反应性反馈小的优点,因此在快堆中通常采用金属燃料^[16]。此外,金属燃料方便通过金属精炼进行燃料循环,或溶解在熔盐电解质里面进行电解精炼。电解精炼可以分离裂变产物,组合回收铀、钚和次锕系元素,可以支持防止核扩散的、经济的再处理方案^[17-18]。

精密铸造是生产 EBR-II 驱动燃料芯块的唯一技术,在建造和操作设备都较为简便以及相对短的生产周期条件下,该技术能够确保生产出不含织构的产品,因此可以被用作冷原型线和再处理热生产线。在 EBR-II 和 FFTF 金属燃料辐照测试中使用的燃料块即采用精密铸造法进行生产,生产流程如图 5 所示^[11]。

金属原料(铀、钚和合金元素)可以从金属乏燃料中获得。金属原料制备技术有两种:1) 熔融精炼技术;2) 熔盐电化学再处理技术。熔融精炼为早期的再处理技术,它是通过在 ZrO₂ 坩埚中熔化乏燃料来实现的。熔盐电化学再处理技术是目前使用的热冶炼技术,用于从不溶解的包壳中溶解(熔盐中)和分离乏燃料^[18]。

注射铸造最初的技术采用常规的熔炼浇铸技术,

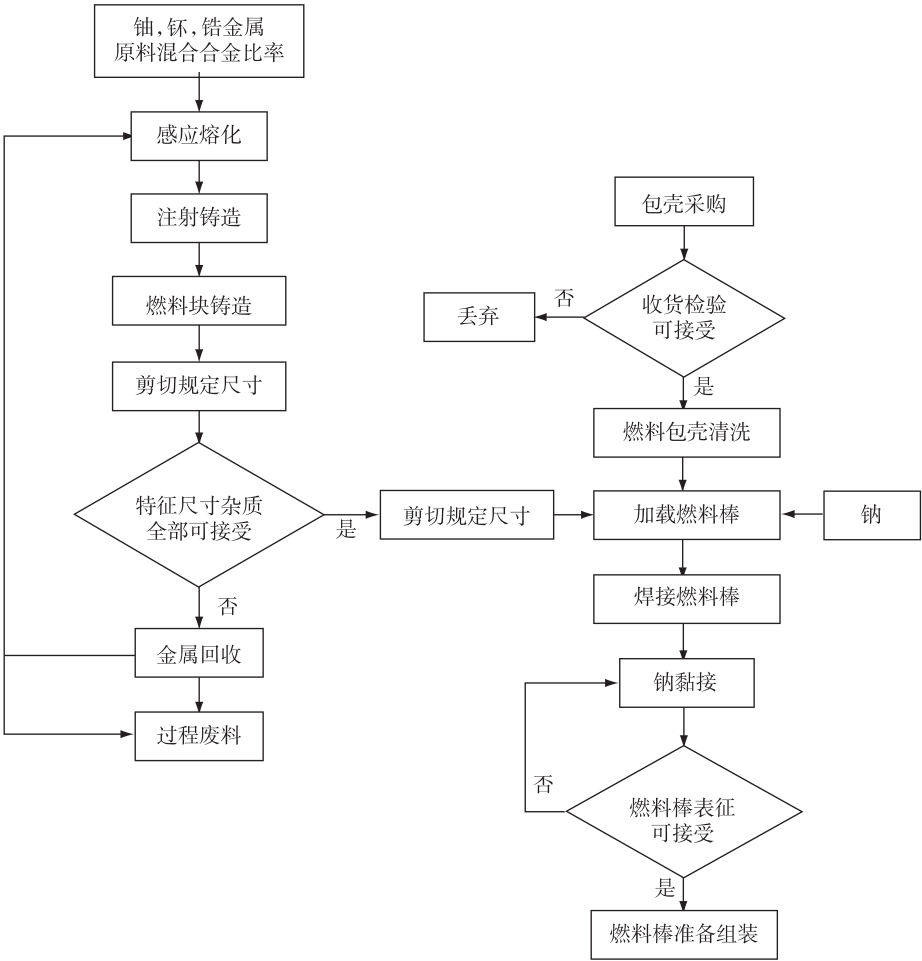


图 5 快堆金属燃料制备流程图

Fig. 5 Process flow diagram for fast reactor metal fuel fabrication

通过 U-Fs 的预合金化来生产注射铸造的原料. 随后则取消了预合金化的过程, 采用新鲜的浓缩铀、切碎的再循环燃料芯块和注射铸造脚料来生产样品. 然后根据规定的长度、直径和质量将燃料块修剪至合适的尺寸. 采用 X 射线摄像技术检测燃料芯块的内部缺陷, 如空位和裂纹. 通过化学同位素分析技术, 对燃料芯块的顶部、中心和底部进行随机采样, 以测定燃料芯块的成分和均匀性^[11].

燃料芯块完全通过安全检验后可进行燃料棒的制造. 生产燃料套管, 在管内装入燃料芯块后注入 Na 以利于结合并最终焊合封装. 所生产的燃料棒需进行尺寸检测和 He 泄漏检测. 通过肉眼目测和射线成像技术检查焊接处裂纹^[11].

6 美国先进快堆金属燃料评估结果^[19]

未来快堆燃料系统不仅具备传统快中子谱核燃

料的所有功能, 还可以焚烧再循环的锕系元素, 为“闭式”核燃料循环提供机理上的支持. EBR-II 与 FFTF 辐照测试有效验证了 U-Zr 合金作为 FFTF 的驱动燃料的资格, 证明了燃料棒的长度对任何金属燃料性能都没有影响. 金属燃料为系统候选燃料, 包括可裂变的 U、U-Pu 合金或少数锕系元素与 U-Pu 的合金. 通常加入质量分数 10%~30% 的 Zr 以稳定合金性能, 提高合金熔点并减少 FCCI, 采用 Na 填充, 包壳材料为奥氏体钢或铁素体-马氏体钢(FM)或镍基合金. 新一代反应堆燃料设计把轻水堆乏燃料中的次锕系元素(MA)和 TRU 整合到燃料基体内, 焚烧或销毁了长寿命的 MA, 实现了最小化长寿命放射性废物总量的目的. 理想的生产技术应采用精确的注射浇铸工艺, 且可同时应用于冷加工和热处理. 金属燃料在稳态辐照下具有的优良辐照性能已经得到证实.

在 EBR-II 和 FFTF 的驱动燃料实验项目里, 燃料深度达到 10% 的合金燃料在测试中证实了高燃料

特性.在 EBR-II 停堆后,X435 的 Mk-III 燃耗深度达 19.9%,当时无任何迹象表明这些数据会就此终结,只要继续辐照,燃耗深度可以突破到更高.

含 MA 燃料也有可能具有杰出性能.目前已实施了 3 个稳态超铀金属燃料试验:EBR-II-X501, AFC1 以及 METAPHIX-1 和-2. METAPHIX 系列实验对象包括含超铀元素和稀土元素的 U-Pu-Zr 金属燃料基化合物^[20],实验时无燃料失效现象出现.研究人员在瞬态反应堆测试装置(TREAT)中,针对 15 组分别采用 316、D9 和 HT9 不锈钢做包壳的 U-5Fs、U-Zr 和 U-Pu-Zr 金属燃料棒进行了 6 个 M 系列的测试,结果显示,现代设计的金属燃料棒的失效阈值约为 4 倍额定功率^[21].

金属燃料具有优良的安全裕度、出众的瞬态特性,对反应堆的瞬态运行和负荷能力不产生任何限制.金属燃料还具有稳定的包壳泄露后运行性能特征.金属燃料芯部的实际功率运行裕度远大于其他燃料系统,从正常运行工况到假定的严重事故,金属燃料在整个中子谱能量区域内都具有相同乃至更优良的安全特性.1986 年 6 月在 EBR-II 中进行的 2 次里程碑式的实验证实了金属燃料的非能动安全潜能^[22-23].

往 Pu 中添加镅(Am)和 Zr 可以显著提高合金的固相线温度,只加入镎(Np)与 Pu 合金化则效果并不明显.金属燃料的平均热传导率很高,因此中心线温度较低,在线热功率为 40 kW/m 时,其温度约为 790 °C.只有在高燃耗下(譬如已裂变原子分数为 15%~20%),由于固体裂变产物的积累燃料内才会发生燃料与包壳间机械相互作用(FCMI).即便如此,疏松多孔的燃料硬度也很低. FCMI 对金属燃料芯块失效的影响至少比陶瓷燃料低一个数量级,它并不是所预期的造成燃料失效的原因.

燃料截面密度低的金属合金燃料肿胀率会达到约 30%,此时产生的气孔发生相互联通.一旦相互联通的气孔网进一步发展,裂变产生的气体便会释放,气体驱动的燃料肿胀显著降低.之后的燃料肿胀则是由固体裂变产物的积累造成的^[24].含 U、Pu、Am、Np、Zr 的金属燃料在 EBR-II 内进行了多年的辐照实验.这些合金与同时作为填充剂和冷却剂的 Na 兼容性好,运行期间未发生反应.在相对可预测的速率下,可以观察到 Zr 基金属燃料和不锈钢包壳之间的 FC-CI^[24].

金属合金燃料的使用经验为快中子反应堆采用金属合金燃料,实现稳态运行下达到燃耗 10%的目标

提供了依据.目前已证实,金属合金燃料采用铁素体马氏体钢包壳后运行燃耗可达 19%.在有限屏蔽的辐照实验条件下,含 MA 金属燃料合金在测试中无明显的性能问题.燃料组分扩散、燃料包壳化学相互作用、包壳应变等都是含 MA 金属燃料发展所需研究的关键性能问题.另外,含 Am 的金属合金燃料生产必须通过工程化验证.兼顾考虑金属合金燃料所面临的挑战和历史性能之后,采用金属合金燃料供能的未来快中子谱反应堆,发展前景很好.

7 结论和展望

快堆燃料循环可显著提高铀资源利用率和减少核废物量.传统快堆与“闭式”燃料循环相互依赖,限制了可持续核能系统的早日启动.行波堆作为革新性的先进快堆,具有削弱甚至消除传统快堆与“闭式”燃料循环耦合的巨大潜力,其中行波堆“一次通过式”燃料循环可能在不需后处理的情况下率先实现快堆商业化.

金属燃料是发展行波堆和先进快堆的核心技术.美国关于金属快堆燃料研发、测试、制造技术的经验十分丰富,其中 U-Pu-Zr 合金的燃耗已不低于 20%,日本已实现 U-Zr 合金燃料的工业规模生产,印度已研制出 U-2Zr 合金燃料棒,我国在金属燃料领域研发处于起步阶段.金属燃料在稳态辐照下具有的优良辐照性能已经得到证实.目前的金属燃料和包壳技术虽不能完全满足行波堆实现足够潜能的要求,但可以在原有基础上研发制造,并在未来的行波堆中边运行边测试.以金属燃料为基础的行波堆一旦开发成功,将是核能利用的重大突破性创新.

参考文献:

- [1] 徐铎.发展快堆技术,保证核能可持续发展[J].中国核电,2012,5(2):98-101.
- [2] Waltar A E, Todd D R, Tsvetkov P V. Fast spectrum reactors [M]. New York: Springer, 2012: 3-46.
- [3] 顾忠茂.核能及核燃料循环论文选辑——纪念中央领导系列重要批示十周年[C].北京:中国原子能科学研究院, 2014: 103-144.
- [4] 李宁.快堆与核燃料循环的未来[J].中国核工业, 2013 (10): 30-32.
- [5] 潘自强.核燃料循环前段与后段技术发展战略研究[M].北京:中国原子能出版社, 2013: 117-143.
- [6] 郭奇勋, 李宁.核燃料循环的未来[M].厦门:厦门大学出版社, 2015: 1-25.

- [7] Kazimi M, Moniz E J, Forsberg C W. The future of the nuclear fuel cycle [M]. Cambridge: Massachusetts Institute of Technology (MIT), 2011: 1-30.
- [8] 胡赞, 徐铄. 快堆金属燃料的发展[J]. 原子能科学技术, 2008, 42(9): 810-815.
- [9] 尹邦跃, 屈哲昊. 快堆金属燃料制造工艺路线研究总结报告[C]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2010.
- [10] Gilleland J. Traveling wave reactor technology development and deployment [C]. Seattle: TerraPower, 2010.
- [11] Burkes D E, Fielding R S, Porter D L, et al. A US perspective on fast reactor fuel fabrication technology and experience part I: metal fuels and assembly design [J]. Journal of Nuclear Materials, 2009, 389: 458-469.
- [12] Zegler S T, Nevitt M V. Structures and properties of uranium-fissium alloys [C]. Argonne: Argonne National Laboratory, 1961: ANL-6116.
- [13] Pitner A L, Baker R B. Metal fuel test program in the FFTF [J]. Journal of Nuclear Materials, 1993, 204: 124-130.
- [14] Walter C M, Golden G H, Olson N J. U-Pu-Zr metal alloy: a potential fuel for LMFBRs [C]. Argonne: Argonne National Laboratory, 1975: ANL-76-28.
- [15] Pahl R G, Porter D L, Lahm C E, et al. Experimental studies of U-Pu-Zr fast reactor fuel pins in the experimental breeder reactor-II [J]. Metallurgical and Materials Transactions A, 1990, 21: 1863-1870.
- [16] Mohr D, Chang L K, Feldman E E, et al. Loss-of-primary-flow-without-scam tests: Pretest predictions and preliminary results [J]. Nuclear Engineering and Design, 1987, 101: 45-56.
- [17] Burris L, Steunenbergh R K, Miller W E. The application of electrorefining for recovery and purification of fuel discharged from the integral fast reactor [J]. AIChE Symposium, 1987, 254(83): 135.
- [18] Chang Y I. The integral fast reactor [J]. Nuclear Technology, 1989, 88: 129-138.
- [19] Carmack W J, Porter D L, Chang Y I, et al. Metallic fuels for advanced reactors [J]. Journal of Nuclear Materials, 2009, 392: 139-150.
- [20] Ohta H, Ogata T, Yokoo T, et al. Low-Burnup irradiation behavior of fast reactor metal Fuels containing minor actinides [J]. Nuclear Technology, 2009, 165: 96-110.
- [21] Wright A E, Dutt D S, Harrison L J. Proceedings of international conference on fast reactor safety IV [C]. La Grange Park: American Nuclear Society, 1990: 129.
- [22] Fistedis S H. The experimental breeder reactor-II inherent safety demonstration, vol. 101 of nuclear engineering and design No. 1 [M]. NY: North-Holland, 1987.
- [23] Wade D C, Chang Y I. The integral fast reactor concept: physics of operation and Safety [J]. Nuclear Science and Engineering, 1988, 100: 507-524.
- [24] Keiser D D, Jr, Petri M C. Interdiffusion behavior in U-Pu-Zr fuel versus stainless steel couples [J]. Journal of Nuclear Materials, 1996, 240: 51-61.

Fast Reactor Fuel Cycles and Metal Fuels

GUO Qi-xun*, LI Ning

(Institute for Nuclear Energy, College of Energy, Xiamen University, Xiamen 361102, China)

Abstract: As the most important type of nuclear reactors in Generation IV nuclear systems, fast reactors are expected to significantly improve the uranium resource utilization and reduce the amount of nuclear waste. Fast reactors, their associated nuclear fuel cycles, and metal fuel technologies have attracted increasing attention. This paper summarizes the research progress of fast reactors, nuclear fuel cycles, and metal fuel technologies, with focus on traveling wave reactors and metal fuel technologies, and expounds the significance of using the travelling wave reactor "once through" fuel cycle to realize the early large-scale commercialization of fast reactors and sustainable nuclear energy systems.

Key words: nuclear energy; nuclear fuel cycle; fast reactor; traveling wave reactor; metal fuel